

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : **04-235177**

(43)Date of publication of application : **24.08.1992**

(51)Int.Cl.

C07D307/79

A01N 43/12

C07D307/82

(21)Application number : **03-011695**

(71)Applicant : **NIPPON KAYAKU CO LTD**

(22)Date of filing : **09.01.1991**

(72)Inventor : **TOTANI TETSUYA
KATO YASUHIITO
YAJIMA YOSHIMI
WATABE TETSUO
YANAGI MIKIO**

(54) NEW HYDRAZINE DERIVATIVE AND INSECTICIDAL COMPOSITION CONTAINING THE SAME DERIVATIVE AS ACTIVE INGREDIENT

(57)Abstract:

PURPOSE: To obtain a composition having high insecticidal effects against noxious insects, especially noxious insect of Lepidopters (e.g. *Plutella xylostella*, *Spodoptera litura*, *Cnaphalocrocis medinalis* or *Adoxophyes orana*) which become problems because of resistance to insecticides acquired recent years.

CONSTITUTION: A new hydrazone derivative having a benzofuran ring and insecticidal composition containing the same derivative as active ingredient.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平4-235177 ✓

(43) 公開日 平成4年(1992)8月24日

(51) Int.Cl. ⁵	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
C 0 7 D 307/79		7729-4C		
A 0 1 N 43/12	A	8930-4H		
	Z	8930-4H		
C 0 7 D 307/82		7729-4C		

審査請求 未請求 請求項の数2 (全 15 頁)

(21) 出願番号	特願平3-11695	(71) 出願人	000004086 日本化薬株式会社 東京都千代田区富士見1丁目11番2号
(22) 出願日	平成3年(1991)1月9日	(72) 発明者	戸谷 哲也 埼玉県与野市上落合1090
		(72) 発明者	加藤 康仁 埼玉県与野市上落合1039
		(72) 発明者	矢島 義美 埼玉県岩槻市金重287
		(72) 発明者	渡部 哲夫 埼玉県与野市上落合1090
		(72) 発明者	柳 幹夫 埼玉県桶川市川田谷4265-3

(54) 【発明の名称】 新規ヒドラジン誘導体およびそれを有効成分とする殺虫組成物

(57) 【要約】

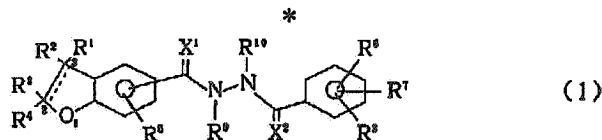
【構成】 ベンゾフラン環を有する新規なヒドラジン誘導体及び該誘導体を有効成分として含有する殺虫組成物。

【効果】 この誘導体は、近年殺虫剤に抵抗性をつけて問題になっている害虫、特にリン翅目害虫（コナガ、ハスモンヨトウ、コブノメイガ、チャノコカクモンハマキなど）に対し高い殺虫効果を有する。

【特許請求の範囲】

【請求項1】一般式

*【化1】



〔式中X¹およびX²は同じか異っており、O、SまたはNRであり、R¹、R²、R³及びR⁴は同じか異ってもよい水素原子、低級アルキル基、ハロゲン原子を示し

(ただし2-位と3-位の間の炭素と炭素結合は単結合又は二重結合を示す)、R⁵、R⁶、R⁷及びR⁸は、それぞれ独立に水素原子、ハロゲン原子、C₁~C₄)アルキル基、(C₂~C₅)アルケニル基、(C₂~C₅)アルキニル基、(C₁~C₄)アルコキシ基、(C₁~C₄)ハロアルキル基、(C₁~C₄)ハロアルコキシ基、シアノ基又はニトロ基を示す。R⁹は水素原子、シアノ基、低級アルキル基、SR¹¹(ただしR¹¹はハロメチル基を表わす)、ハロゲン原子若しくはOR¹²(ただしR¹²は、水素原子、(C₁~C₄)アルキル基、(C₁~C₅)アシル基を示す)で置換されていてもよい(C₁~C₄)アルキル基、(C₂~C₄)アルキニル基又は(C₂~C₄)アルケニル基を示す。R¹⁰は非置換の(C₃~C₁₀)分枝アルキル基又は、同じか若しくは異なった1または2個の(C₃~C₆)シクロアルキルで置換された(C₁~C₄)直鎖状アルキル基を示す。〕で表わされる新規ヒドラジン誘導体。

【請求項2】請求項1の一般式(1)で表される新規ヒドラジン誘導体を有効成分として含有することを特徴とする殺虫組成物。

【0001】

【発明の詳細な説明】

【産業上の利用分野】本発明は新規なヒドラジン誘導体に関するものであり、該誘導体は水田、畑地、果樹園、森林または環境衛生場面における殺虫剤として利用することができる。また、該誘導体は人又は動物を寄生虫の※

※障害から保護するために寄生虫防除剤として利用することができる。

【0002】

10 【従来の技術】特開昭62-167747号にはN'-置換-N, N'-ジアシルヒドラジン誘導体が殺虫活性を有することが記載され、また特開昭62-263150号にはN-置換-N'-置換-N, N'-ジアシルヒドラジン誘導体が殺虫活性を有することが記載されている。しかし、これらの特許には後記する本発明の誘導体について具体的な記載はされていない。

【0003】

20 【発明が解決しようとする課題】水田、畑地、果樹園、森林、または環境衛生場面における有害生物防除場面で、より大きい殺虫活性及び有益昆虫、環境等には害を及ぼさない性質を有し、かつ低毒性な化合物が要求されている。また、最近では公知の殺虫剤たとえば有機リン剤、カーバメート剤、ピレスロイド剤等に対し抵抗性を示す害虫が増大し、防除が困難となっており、新しいタイプの薬剤が要求されている。

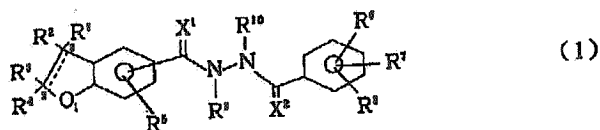
【0004】本発明は、有益昆虫、環境等には実質的に害を及ぼさず、低毒性で薬剤抵抗性害虫にも卓効を示す新しいタイプの殺虫性化合物及びそれを有効成分とする殺虫組成物を提供することを目的としている。

30 【0005】

【課題を解決するための手段】上記目的を達成するために鋭意研究した結果、一般式、

【0006】

【化2】



【0007】〔式中X¹およびX²は同じか異っており、O、SまたはNRであり、R¹、R²、R³及びR⁴は同じか異ってもよい水素原子、低級アルキル基、ハロゲン原子を示し(ただし2-位と3-位の間の炭素と炭素結合は単結合または二重結合を示す)、R⁵、R⁶、R⁷及びR⁸は、それぞれ独立に水素原子、ハロゲン原子、(C₁~C₄)アルキル基、(C₂~C₅)アルケニル基、(C₂~C₅)アルキニル基、(C₁~C₄)アルコキシ基、(C₁~C₄)ハロアルキル基、(C₁~C₄)ハロアルコキシ基、シアノ基又はニトロ基を示す。

50 【0008】R⁹は水素原子、シアノ基、低級アルキル基、SR¹¹(ただしR¹¹はハロメチル基を表わす)、ハロゲン原子若しくはOR¹²(ただしR¹²は、水素原子、(C₁~C₄)アルキル基、(C₁~C₅)アシル基を示す)で置換されていてもよい(C₁~C₄)アルキル基、(C₂~C₄)アルキニル基又は(C₂~C₄)アルケニル基を示す。R¹⁰は非置換の(C₃~C₁₀)分枝アルキル基又は、同じか又は異なった1または2個の(C₃~C₆)シクロアルキルで置換された(C₁~C₄)直鎖状アルキル基を示す。〕で表わされる新規ヒド

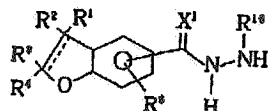
3

ラジン誘導体がすぐれた殺虫活性を有することを見出し本発明を完成するに至った。

【0009】本発明の一般式(1)の化合物は以下の方法で製造することができる。すなわち、一般式(2)で表わされるヒドラジドと

【0010】

【化3】

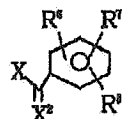


(2) 10

(式中、X¹、R¹、R²、R³、R⁴、R⁵、R¹⁰は前記と同じ意味を有する。)一般式(3)で表わされるベンゾイルハライドとを溶媒及び塩基の

【0011】

【化4】



(3)

(式中、X²、R⁶、R⁷及びR⁸は前記と同じ意味を表わし、Xはハロゲン原子を示す。)

【0012】の存在下で反応させることにより一般式(1)の化合物(R⁹が水素原子)を得ることができる。

【0013】反応は一般式(2)の化合物と一般式(3)の化合物とを任意の割合で使用することができるが、好ましくは等モル比かほぼ等モル比で使用する。溶媒としては反応物に対して不活性な溶媒を用いることができる。たとえば、ヘキサン、ヘプタンなどの脂肪族炭化水素類、ベンゼン、トルエン、キシレンなどの芳香族炭化水素類、クロロホルム、ジクロロメタン、クロロベンゼンなどのハロゲン化炭化水素類、ジエチルエーテル、テトラヒドロフランなどのエーテル類、アセトニトリル、プロピオニトリルなどのニトリル類などが挙げられる。これらの混合溶媒及びこれらと水との混合溶媒を用いることもできる。

【0014】塩基としては例えば、水酸化カリウム、水酸化ナトリウムなどの無機塩基、トリエチルアミン、ピリジンなどの有機塩基を使用することができる。トリエチルアミン、ピリジンなどの有機塩基を用いた場合は大過剰に用いて溶媒として使用することもできる。塩基の量は理論量もしくは過剰に用いることができるが、好ましくは理論量がそれより1.0~5.0倍過剰な量を用いる。反応は、-20℃から溶媒の沸点までの温度範囲で行なうことができるが好ましくは0℃~50℃の範囲である。N,N'-ジメチルアミノピリジンなどの触媒を反応系中に添加することもできる。

【0015】一般式(1)の化合物においてR⁹がシア 50

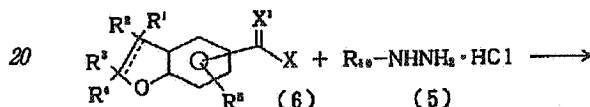
4

ノ基、SR¹¹(ただしR¹¹はハロメチル基を表わす)または、ハロゲン原子、OR¹²(ただしR¹²は水素原子、(C₁~C₄)アルキル基、(C₁~C₄)アシル基を示す)で置換されていてもよいアルキル基、アルキニル基、アルケニル基の化合物は、R⁹が水素原子の化合物を水素化ナトリウム等が塩基の存在下、不活性溶媒たとえばテトラヒドロフラン、N,N'-ジメチルホルムアミド等中で相応するハロゲン化合物たとえばシアノゲンプロミド、プロピルプロミド、プロパルギルプロミド、アリールプロミド、ハロゲノスルフェニルハライド等を反応させることにより得ることができる。

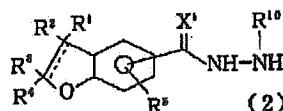
【0016】一般式(1)の化合物を製造するために用いられる一般式(2)の化合物は式(5)の化合物と対応する一般式(4)で表わされる。ベンゾイルハライドとを反応させることにより得ることができる。該反応を下記に図示する。

【0017】

【化5】



20



(2)

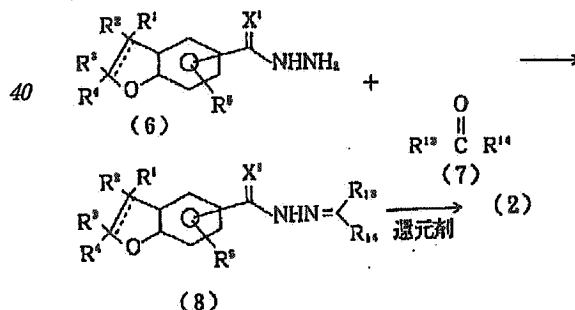
(式中、X¹、R¹、R²、R³、R⁴、R⁵、R¹⁰及びXは前記と同じ意味を表わす。)

【0018】該反応の条件たとえば溶媒、反応温度などは一般式(2)化合物と一般式(3)の化合物との反応に用いられる条件と同じである。

【0019】また、一般式(2)の化合物は式(6)と式(7)のケトンまたはアルデヒドと反応させ、中間生成物(8)が得られる。ついでこれを不活性溶媒中還元剤と反応させることによっても得ることができる。

【0020】

【化6】



40

(8)

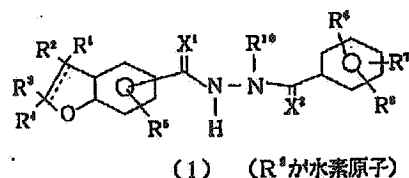
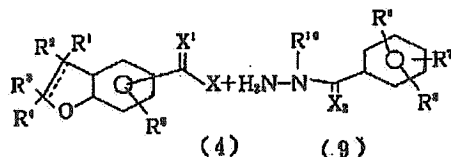
(式中、X¹、R¹、R²、R³、R⁴、R⁵は前記と同じ意味を表わし、R₁₃、R₁₄は水素原子、またはC₁~C₁₀アルキル基を表わす)

5

【0021】また、一般式(1)の化合物は一般式(6)で表されるベンゾイルハライドと一般式(9)で表されるヒドラジドとを反応させることにより得ることができる。該反応を下記に図示する。

【0022】

【化7】



(式中、R¹、R²、R³、R⁴、R⁵、R⁶、R⁷、R⁸、R⁹、R¹⁰及びX、X¹、X²は前記と同じ意味を表わす。)

【0023】該反応の条件たとえば溶媒、反応温度などは一般式(2)の化合物と一般式(3)の化合物との反応に用いられる条件と同じである。一般式(1)の化合物あるいは一般式(2)の化合物の製造時における反応混合物は充分な時間攪拌され通常の後処理たとえば、抽出、水洗、乾燥、溶媒留去等の過程により目的物が回収される。簡単な溶媒洗いをするだけで充分な場合が多いが、必要があれば再結晶あるいはカラムクロマトグラフィーにより精製を行うことができる。

【0024】本発明の一般式(1)の化合物を使用する場合、使用目的に応じてそのまままたは効果を助長あるいは安定にするために農薬補助剤を混用して、農薬製造分野において一般に行なわれている方法により、粉剤、細粒剤、粒剤、水和剤、フロアブル剤、乳剤、マイクロカプセル剤、油剤、エアゾール、加熱燻蒸剤(蚊取線香、電気蚊取など)、フォッキングなどの煙霧剤、非加熱燻蒸剤、毒餌などの任意の製剤形態の組成物にして使用できる。これらの種々の製剤は実際の使用に際しては、直接そのまま使用するか、または水で所望の濃度に希釈して使用することができる。

【0025】ここに言う農薬補助剤としては担体(希釈剤)およびその他の補助剤たとえば展着剤、乳化剤、湿展剤、分散剤、固着剤、崩壊剤等をあげることができる。液体担体としては、トルエン、キシレンなどの芳香族炭化水素、ブタノール、オクタノール、グリコールなどのアルコール類、アセトン等のケトン類、ジメチルホルムアミドのアミド類、ジメチルスルホキシド等のスルホキシド類、メチルナフタレン、シクロヘキサノン、動植物油、脂肪酸、脂肪酸エステルなどまた灯油、軽油等の石油分留物や水などがあげられる。固体担体としては

6

クレー、カオリン、タルク、珪藻土、シリカ、炭酸カルシウム、モンモリロナイト、ベントナイト、長石、石英、アルミナ、鋸屑などがあげられる。

【0026】また乳化剤または分散剤としては通常界面活性剤が使用され、たとえば高級アルコール硫酸ナトリウム、ステアリルトリメチルアンモニウムクロライド、ポリオキシエチレンアルキルフエニルエーテル、ラウリルベタインなどの陰イオン系界面活性剤、陽イオン系界面活性剤、非イオン系界面活性剤、両性イオン系界面活性剤があげられる。

【0027】又、展着剤としてはポリオキシエチレンニルフェニルエーテル、ポリオキシエチレンラウリルエーテルなどがあげられ、湿展剤としてはポリオキシエチレンニルフェニルエーテルジアルキルスルホサクシネートなどがあげられ、固着剤としてカルボキシメチルセルロース、ポリビニルアルコールなどがあげられ、崩壊剤としてはリグニンスルホン酸ナトリウム、ラウリル硫酸ナトリウムなどがあげられる。

【0028】さらにこれら本発明化合物は2種以上の配合使用によって、より優れた殺虫力を発現させることも可能であり、また他の生理活性物質、たとえばアレスリン、フタルスリン、パーメスリン、デカメスリン、フェンバレート、シクロプロトリンなどのピレスロイドおよび各種異性体、除虫菊エキス、DDVP、フェントロチオン、ダイアジノン、テメホスなどの有機リン系殺虫剤、NAC、MTMC、BPMC、ピリマーなどのカーバメート系殺虫剤、その他の殺虫剤、殺ダニ剤あるいは殺菌剤、殺線虫剤、除草剤、植物生長調整剤、肥料、BT剤、昆虫ホルモン剤その他の農薬などと混合することによりさらに効力のすぐれた多目的組成物をつくることもでき、また相乗効果も期待できる。

【0029】さらに、たとえばピペロニルブトキシド、サルホキシド、サフロキサンなどのピレスロイド用共力剤として知られているものを加えることにより、この効力を数倍にすることもできる。また、本発明化合物は光、熱、酸化等に安定性が高いが、必要に応じ酸化防止剤あるいは、紫外線吸収剤、たとえばBHT、BHAのようなフェノール類、α-ナフチルアミンなどのアリールアミン類あるいはベンゾフェノン系化合物類を安定剤として適宜加えることによって、より効果の安定した組成物を得ることができる。

【0030】本発明組成物における有効成分含有量は製剤形態、施用する方法その他の条件により異なり場合によっては有効成分化合物のみでよいが通常は0.2~95% (重量) 好ましくは0.5~80% (重量) の範囲である。

【0031】本発明の組成物の使用量は剤形、施用する方法、時期、その他の条件によって変るが、農園芸用剤、森林防害虫用剤及び牧野害虫用剤は通常10アール当たり有効成分量で10~300g、好ましくは15~2

0.0 g が使用され、衛生防虫剤は通常1m² 当り有効成分で2~200 mg、好ましくは5~100 mgが使用される。たとえば粉剤は10アールあたり有効成分で15~120 g、粒剤は有効成分で30~240 g、また乳剤、水和剤は有効成分で40~250 gの範囲である。しかしながら特別の場合には、これらの範囲を超えることが、または下まわることが可能であり、また時には必要でさえある。

【0032】また、寄生虫の防除のために、本発明の一般式(1)の化合物を使用する場合、体重につき、0.1~200 mg/kgに相当する投与量で用いることができる。与えられた状態に対する正確な投与量は、日常的に決定することができ、種々の因子、たとえば、用いられる物質、寄生虫の種類、用いられる配合及び寄生虫にかかったヒトあるいは動物の状態に依存する。

【0033】本発明の殺虫組成物の適用できる具体的な害虫名を挙げる。半翅目〔Hemiptera〕からたとえばツマグロヨコバイ (*Nephotettix cincticeps*)、セジロウンカ (*Sogatella furcifera*)、トビイロウンカ (*Nilaparvata lugens*)、ヒメトビウンカ (*Laodelphax striatellus*)、ホソヘリカメムシ (*Riptortus clavatus*)、ミナミアオカメムシ (*Nezara viridula*)、ナシグンバイ (*Stephanitis nashi*)、

【0034】オンシツコナジラミ (*Trialeurodes vaporariorum*)、ワタアブラムシ (*Ap-his gossypii*)、モモアカアブラムシ (*Myzus persicae*)、ヤノネカイガラムシ (*Unaspis yanonensis*)、鱗翅目〔Lepidoptera〕からたとえばキンモンホソガ (*Phyllonorycter ringonella*)、コナガ (*Plutella xylostella*)、ワタミガ (*Promalactis inonisea*)、コカクモンハマキ (*Adoxophyes orana*)、マメシンクイガ (*Leguminivora glycinivorella*)、コブノメイガ (*Cnaphalocrocis medinalis*)、ニカメイガ (*Chilo suppressalis*)、アワノメイガ (*Ostrinia furnacalis*)、ヨトウガ (*Mamestra brassicae*)、アワヨトウ (*Pseudaletia separata*)、

【0035】ハスモンヨトウ (*Spodoptera litura*)、イネツトムシ (*Parnara guttata*)、モンシロチョウ (*Pieris rapae crucivora*)、ヘリオチス (*Heliothis* spp.)、ヤガ (*Agrotis* spp.)、鞘翅目〔Coleoptera〕からたとえばドウガネブイブイ (*Anomala cuprea*)、マメコガネ (*Popillia japonica*)、イネゾウムシ (*Echinocnemus scameus*)、イネミズゾウムシ (*Lis*

10

20

30

40

sorhoptus oryophilus)、

【0036】イネドロオイムシ (*Oulema oryzae*)、ヒメマルカツオブシムシ (*Anthrenus verbasici*)、コクヌスト (*Tenebroides mauritanicus*)、コクゾウムシ (*Sitophilus zeamais*)、ニジュウヤホシテントウ (*Hemiteles vigintioctopunctatus*)、アズキゾウムシ (*Callosobruchus chinensis*)、マツノマダラカミキリ (*Monochamus alternatus*)、ウリハムシ (*Aulacophora femoralis*)、レプチノタルサ・デセムリネアタ (*Lep tinotarsa decemlineata*)、

【0037】フェドン・コクレアリアエ (*Phaedon cochleariae*)、ジアプロチカ (*Diabrotica* spp.)、膜翅目〔Hymenoptera〕として、たとえばカブラハバチ (*Athalia rosae japonensis*)、ルリチュウレンジハバチ (*Arge similis*)、双翅目〔Diptera〕としてたとえばネッタイエカ (*Culex pipiens fatigans*)、ネッタيشマカ (*Aedes aegypti*)、ダイズサヤタマバエ (*Asphondylia* sp.)、タネバエ (*Hyalemya platura*)、イエバエ (*Musca domestica vicina*)、

【0038】ウリミバエ (*Dacus cucurbitae*)、イネハモグリバエ (*Agromyza oryzae*)、キンバエ (*Lucilia* spp.)、隠翅目〔Aphaniptera〕としてヒトノミ (*Pulex irritans*)、ケオプスネズミノミ (*Xenopsylla cheopis*)、イヌノミ (*Ctenocephalides canis*)、総翅目〔Thysanoptera〕としてチャノキイロアザミウマ (*Scirtothrips dorsalis*)、

【0039】ネギアザミウマ (*Thrips tabaci*)、ミナミキイロアザミウマ (*Thrips palmi*)、イネアザミウマ (*Baliothrips bifurcata*)、シラミ目〔Anoplura〕として、たとえばコロモジラミ (*Pediculus humanus corporis*)、ケジラミ (*Phthirus pubis*)、チャタテムシ目〔Psocoptera〕として、たとえばコチャタテ (*Trogium pulsatorium*)、ヒラタチャタテ (*Liposcelis bostrychophilus*)、直翅目〔Orthoptera〕としてケラ (*Gryllotalpa africana*)、トノサマバッタ (*Locusta migratoria*)、コバネイナゴ (*Oxya yezoensis*)、チャバネゴキブリ (*Blattella germanica*)、クロゴキブリ (*Periplaneta fuliginosa*)。

【0040】また、本発明の殺虫組成物が適用できるヒトを苦しめる最も重要な寄生虫及びそれによる病気を次に要約するが、これらに限定されるものではない。

【0041】

病 名

Bilharziosis又は
Schistosomiasis

Ancylostomiasis

生 物

Schistosoma mansoni

S. japonicum

S. Haematobium

(住血吸虫、吸虫)

Necator americanus

Ancylostoma duodenale

(鉤虫、線虫)

Ascariasis

【0042】

Filariasis又は
elephantiasisOnchocerciasis又は
river blindness
Loiasis

【0043】

【実施例】以下は実施例をあげて本発明を説明するが、
本発明はこれらのみに限定されるものではない。

【0044】製造例1

2, 3-ジヒドロ-5-ベンゾフランカルボキシリック
アシッドの製造: マグネシウム片1.96gに、2, 3-
ジヒドロ-5-プロモベンゾフラン16gの無水THF
溶液150mlを加え、Grignard化合物を形成させ、続
いて、反応溶液が約50℃を保つように攪拌下滴下し
た。さらに30分間加熱還流し、ついで混合物を冷却し
た。この混合物をエーテル中のドライアイスにゆっくり
と加え室温に戻した後、水にて抽出を行った。水層を1
0% HCL水にて酸性とし、酢酸エチルエステルにて抽
出を行い、さらに、飽和食塩水にて洗浄を行い、口過
後、減圧下に溶媒を留去し目的とする。2, 3-ジヒド
ロ-5-ベンゾフランカルボキシリックアシッド9.23
gを得た。(収率70.0%)。

【0045】製造例2

N-2, 3-ジヒドロ-5-ベンゾフランニル-N'-tert-
ブチルヒドラジドの製造(一般式(2)で表わされ
る化合物の合成例): 2, 3-ジヒドロ-5-ベンゾフ
ランカルボキシリックアシッド2.3g、塩化チオニル1.
5mlをクロロホルム10mlに加え、2時間加熱還流し
た。過剰の塩化チオニル及び溶媒を留去し、塩化メチ
レン10mlに溶解した。tert-ブチルヒドラジン塩酸塩3.
5g、10%水酸化ナトリウム水溶液17mlを塩化メチ
レン30mlに加え、氷冷下先の2, 3-ジヒドロ-5-
ベンゾフロイルクロリドの塩化メチレン溶液を滴下し
た。終夜攪拌した後、水中に注ぎ、塩化メチレンにて抽
出を行った。有機層を飽和食塩水で洗浄し、無水硫酸マ
グネシウム上で乾燥した。減圧下溶媒を留去し目的とす
る。N-2, 3-ジヒドロ-5-ベンゾフランニル-N'-
tert-ブチルヒドラジド2.62g(収率63.0%)を得た。

【0046】製造例3

N-2, 3-ジヒドロ-5-ベンゾフランニル-N'-tert-
ブチル-N'-3, 5-ジメチルベンゾイルヒドラジ
ンの製造: N-2, 3-ジヒドロ-5-ベンゾフランニ
ル-N'-tert-ブチルヒドラジド600mgをピリジン5
mlに溶解し、触媒量の4-ジメチルアミノピリジンを加

Ascaris lumbricoides
(回虫、線虫)Wuchereria bancrofti
Brugia malayi
(線虫)Onchocerca volvulus
(線虫)Loa loa
(眼糸状虫、線虫)

えた。氷冷下、3, 5-ジメチルベンゾイルクロリド5
20mgを滴下し、室温に戻して終夜攪拌した。反応混
合物を水中に注ぎ、塩化メチレンにて抽出を行った。有機
層を10%塩酸、水、および飽和食塩水にて洗浄した後
硫酸マグネシウムにて乾燥し、ろ過後減圧下に溶媒を留
去した。得られた結晶をn-ヘキサンとジエチルエー
テルの混合溶媒で再結晶を行い、目的とする-N-2, 3-
ジヒドロ-5-ベンゾフランニル-N'-tert-ブチル
-3, 5-ジメチルベンゾイルヒドラジン810mg(収
率86.5% 融点210~211℃)を得た。

【0047】製造例4

5-ベンゾフランカルボキシリックアシッドの製造:
2, 3-ジヒドロ-5-ベンゾフランカルボキシリック
アシッド4.0g、N-プロモスクシンイミド4.78g及
び、触媒量の過酸化ベンゾイルを四塩化炭素20mlに溶
解し、2時間加熱還流した。冷却した反応溶液を口過し
た後、酢酸エチルエステルに溶解する。有機層を水およ
び飽和食塩水で洗浄し、無水硫酸マグネシウムにて乾燥
した減圧下に溶媒を留去すると、目的とする5-ベンゾ
フランカルボキシリックアシッド2.0g(収率50%)を
得た。

【0048】製造例5

N-5-ベンゾフランニル-N'-tert-ブチルヒドラジ
ドの製造: 5-ベンゾフランカルボキシリックアシッド
2.0g、塩化チオニル1.8mlをクロロホルム20mlに加
え、2時間加熱還流した。過剰の塩化チオニル及び溶媒
を留去し、塩化メチレン10mlに溶解した。tert-ブチ
ルヒドラジン塩酸塩4.62g、10%水酸化ナトリウム
水溶液20mlを塩化メチレン30mlに加え、氷冷下先の5
-ベンゾフランニルクロリドの塩化メチレン溶液を滴下し
た。2時間攪拌した後、水中に注ぎ塩化メチレンにて抽
出を行った。有機層を飽和食塩水で洗浄し、無水硫酸マ
グネシウムにて乾燥した。減圧下溶媒を留去し目的とす
る。N-5-ベンゾフランニル-N'-tert-ブチルヒド
ラジド2.3g(収率80.0%)を得た。

【0049】製造例6

N-5-ベンゾフランニル-N'-tert-ブチル-N'-
3, 5-ジメチルベンゾイルヒドラジンの製造: N-5-
ベンゾフランニル-N'-tert-ブチルヒドラジド40
0mgをピリジン5mlに溶解し、触媒量の4-ジメチルア

11

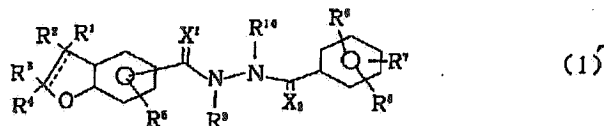
ミノピリジンを加えた。氷冷下、3, 5-ジメチルベンゾイルクロリド320mgを滴下し、室温に戻して終夜攪拌した。反応混合物を水中に注ぎ、塩化メチレンにて抽出を行った。有機層を10%塩酸、水および飽和食塩水にて洗浄を行った後、無水硫酸マグネシウムにて乾燥し、ろ過後減圧下に溶媒を留去した。得られた結晶をn-ヘキサンとジエチルエーテルの混合溶媒で再結晶を行*

12

*い、目的とするN-5-ベンゾフラニル-N'-tert-ブチル-N-3, 5-ジメチルベンゾイルヒドラジン520mg(収率83.1% 融点236~237℃)を得た。

【0050】次に本発明に係る一般式(1)で表わされる化合物の代表例を第1~第4表に示す。

【化8】



【0051】第1表

【表1】

No.	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	R ⁶	R ⁷	R ⁸
1	H	H	H	H	H	3-Me	5-Me	H
2	H	H	H	H	H	H	H	H
3	H	H	H	H	H	4-F	5-Me	H
4	H	H	H	H	H	3-Me	H	H
5	H	H	H	H	4-Me	2-Cl	H	H
6	H	H	H	H	4-Me	3-Me	5-Me	H
7	H	H	H	H	H	2-Br	4-F	H
8	H	-	H	-	H	3-Me	5-Me	H
9	H	-	H	-	H	2-F	H	H
10	H	-	H	-	H	2-CHF ₃	H	H
11	H	-	H	-	H	2-NO ₂	H	H
12	H	-	H	-	H	2-Cl	5-Me	H
13	H	-	H	-	4-Me	3-Me	5-Me	H
14	H	-	H	-	4-Me	2-Cl	4-Cl	H

【0052】第1表(続き)

【表2】

13

14

No	R ⁹	R ¹⁰	X ¹	X ²	融点(°C)
1	H	-CMe ₃	O	O	210~211
2	H	-CMe ₃	O	O	
3	H	-CMe ₃	O	O	160~161
4	H	-CMe ₃	O	O	
5	H	-CMe ₃	O	O	
6	H	-CMe ₃	O	O	
7	H	-CMe ₃	O	O	146~147
8	H	-CMe ₃	O	O	236~237
9	H	-CMe ₃	O	O	
10	H	-CMe ₃	O	O	
11	H	-CMe ₃	O	O	
12	H	-CMe ₃	O	O	200~203
13	H	-CMe ₃	O	O	
14	H	-CMe ₃	O	O	

【0053】第2表

【表3】

15

16

No.	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	R ⁶	R ⁷	R ⁸
15	H	H	H	H	H	3-Me	5-Me	H
16	H	H	H	H	4-Me	3-Me	5-Me	H
17	H	H	H	H	H	3-Me	5-Me	H
18	H	-	H	-	H	3-Me	5-Me	H
19	H	-	H	-	4-Me	3-Me	5-Me	H
20	H	-	H	-	4-Me	3-Me	5-Me	H
21	H	H	H	H	H	3-Me	5-Me	H
22	H	H	H	H	4-Me	3-Me	5-Me	H
23	H	H	H	H	H	3-Me	5-Me	H
24	H	H	H	H	4-Me	3-Me	5-Me	H
25	H	-	H	-	H	3-Me	5-Me	H

【0054】第2表 (続き)

【表4】

No	R ^a	R ^{1a}	X ¹	X ²	融点(°C)
15	H	$-\text{CH} \begin{array}{l} \text{CH}_3 \\ \text{C}(\text{CH}_3)_2 \end{array}$	O	O	
16	H	$-\text{CH} \begin{array}{l} \text{CH}_3 \\ \text{C}(\text{CH}_3)_2 \end{array}$	O	O	
17	H	$-\text{CH} \begin{array}{l} \text{CH}_3 \\ \Delta \end{array}$	O	O	
18	H	$-\text{CH} \begin{array}{l} \text{CH}_3 \\ \text{C}(\text{CH}_3)_2 \end{array}$	O	O	
19	H	$-\text{CH} \begin{array}{l} \text{CH}_3 \\ \text{C}(\text{CH}_3)_2 \end{array}$	O	O	
20	H	$-\text{CH} \begin{array}{l} \text{CH}_3 \\ \text{C}(\text{CH}_3)_2 - \text{CH}_2\text{CH}_2\text{CH}_3 \end{array}$	O	O	
21	$-\text{SOCl}_2\text{F}$	$-\text{CMe}_2$	O	O	
22	$-\text{SOCl}_2\text{F}$	$-\text{CH} \begin{array}{l} \text{CH}_3 \\ \text{C}(\text{CH}_3)_2 \end{array}$	O	O	
23	$-\text{CN}$	$-\text{CMe}_2$	O	O	
24	$-\text{CH}_2\text{OC} +$ O	$-\text{CH} \begin{array}{l} \text{CH}_3 \\ \text{C}(\text{CH}_3)_2 \end{array}$	O	O	
25	$-\text{SOCl}_2\text{F}$	$-\text{CH} \begin{array}{l} \text{CH}_3 \\ (\text{CH}_3)_2 \end{array}$	O	O	

【0055】第3表

【表5】

19

20

No	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	R ⁶	R ⁷	R ⁸
26	H	-	H	-	4-Me	3-Me	5-Me	H
27	H	-	H	-	H	3-Me	5-Me	F
28	H	-	H	-	H	3-Me	5-Me	H
29	Me	H	H	H	H	3-Me	5-Me	H
30	H	H	Me	H	H	3-Me	5-Me	H
31	Me	-	H	-	H	3-Me	5-Me	H
32	H	-	Me	-	H	3-Me	5-Me	H
33	H	-	H	-	4-OMe	3-Me	5-Me	H
34	H	-	H	-	4-Bu ^t	3-Me	5-Me	H

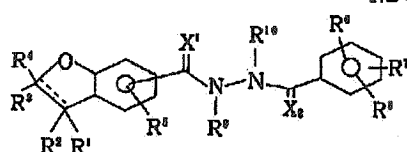
【0056】第3表 (続き)

【表6】

No	R ⁹	R ¹⁰	X ¹	X ²	融点(°C)
26	-SCC ₂ F	$\begin{array}{c} \text{CH} \\ \diagup \quad \diagdown \\ \text{CH}_3 \quad \text{C}(\text{CH}_3)_3 \end{array}$	O	O	
27	$\begin{array}{c} \text{O} \\ \parallel \\ \text{C}-\text{CH}_3 \end{array}$	-CMe ₃	O	O	
28	-CH ₂ -CH=CH ₂	$\begin{array}{c} \text{CH} \\ \diagup \quad \diagdown \\ \text{CH}_3 \quad \text{CH}_2-\text{C}(\text{CH}_3)_3 \end{array}$	O	O	
29	H	CMe ₃	O	O	
30	H	CMe ₃	O	O	
31	H	CMe ₃	O	O	
32	H	CMe ₃	O	O	
33	H	CMe ₃	O	O	
34	H	CMe ₃	O	O	

【0057】

【化9】



(1) "

第4表

【表7】

【0058

【0059

明する。

製剤例1.

化合物番号

レンの混合

ルフェノー

ルホン酸カ

て乳剤とし

る。

【0060

【0062】製剤例4. 粒 剤

化合物番号8の化合物2部をベントナイト微粉末48部、タルク48部、リグニンスルホン酸ナトリウム2部と混合した後、水を加え均等になるまで混練する。次に射出成型機を通して造粒し、整粒機、乾燥機篩を通すことにより粒径0.6～1mmの粒剤とした。本剤は直接水田面および土壌面に散粒して使用する。

【0063】製剤例5. 油 剤

化合物番号1の化合物0.1部にピペロニルブトキサンド0.5部を加え白灯油に溶解し、全体を100部とし、油剤を得た。本剤はこのまま使用する。次に本発明に係る一般式(1)で表わされる化合物の生物効果を試験例により具体的に説明する。

【0064】試験例1. コナガに対する効果(茎葉浸漬法)

本発明化合物の20%水和剤あるいは20%乳剤を製剤*

第5表

供試化合物	死 虫 率 (%)	
	感受性 (上尾産)	抵抗性 (鹿兒島産)
1	100	100
3	100	100
7	100	100
8	100	100
12	100	100
トケチオン	100	0

供試化合物	死 虫 率 (%)	
	感受性 (上尾産)	抵抗性 (鹿兒島産)
サイパーメスリン	100	0

【0067】試験例2. ハスモンヨトウに対する効果
本発明化合物の20%水和剤あるいは20%乳剤を製剤例1および2に従って製造し、供試薬剤とした。

【0068】試験方法：キャベツ本葉10枚程度に生育したキャベツの中位葉を切りとり、各供試薬剤の有効成分が200ppmになるように水で希釈した処理液に20秒浸漬した。風乾後、径9cmのプラスチック容器に処

*例1および2に従って製造し、供試薬剤とした。対照薬剤としてMEP50%乳剤、サイパーメスリン6%乳剤を用いた。

【0065】試験方法：キャベツ本葉10枚程度に生育したキャベツの中位葉を切りとり、各供試薬剤の有効成分が200ppmになるように水で希釈した処理液に20秒間浸漬した。風乾後、径9cmのプラスチック容器に入れ、コナガ3令幼虫10頭を放虫した。容器には小穴を5～6ヶ所あけたふたをして、25℃の低温室内に静置した。処理、放虫してから4日後に生死虫数を調査し、死虫率を算出した。結果は2連の平均値は第5表に示した。なおこのコナガは感受性系統の上尾産および有機リン剤、カーバメート剤、ピレスロイド剤等に抵抗性の鹿兒島産を用いた。

【0066】

理葉を2枚入れ、ハスモンヨトウ3令幼虫5頭を容器中に放虫した。容器には小穴を5～6ヶ所あけたふたをして25℃の定温室内に静置した。処理、放虫してから4日後に生死虫数を調査し、死虫率を算出した。結果は3連の平均値で第6表に示した。

【0069】

第6表

供 試 化合物	死虫率 (%)	供 試 化合物	死虫率 (%)
1	100	8	100
3	100	12	100
7	100		

【0070】試験例3. コブノメイガに対する効果
本発明化合物の20%水和剤あるいは20%乳剤を製剤例1及び2に従って製造し、供試薬剤とした。

【0071】試験方法：3葉期のイネ10本を各供試薬剤の有効成分が200ppmになるように水で希釈した処理液に20秒間浸漬した。風乾後、イネをウレタンで巻きガラス円筒（内径44mm、高さ140mm）内に固定*

*し、コブノメイガ3齢虫を5頭放虫したのち、ガラス円筒の上部を薬包紙でふたをした。ガラス円筒は25℃、16時間明期の恒温室内に静置した。処理、放虫してから5日後に生死虫数を調査し、死虫率を算出した。なお、試験は2連制で行ない、コブノメイガは感受性系統を供試した。結果を第7表に示した。

【0072】

第7表

供 試 化合物	死虫率 (%)	供 試 化合物	死虫率 (%)
1	100	8	100
3	100	12	100
7	100		

【0073】試験例4. チャノコカクモンハマキに対する効果

本発明化合物の20%水和剤あるいは20%乳剤を製剤例1及び2に従って製造し、供試薬剤とした。

【0074】試験方法：長さ5cm前後の茶の葉7枚を供試薬剤の有効成分が200ppmになるように水で希釈した処理液に20秒間浸漬した。風乾後、プラスチック容器（内径70mm、高さ40mm）に入れ、チャノコカク※

30※モハマキ3齢虫を5頭放虫した。容器に小穴を5～6ヶ所あけたふたをして、25℃、16時間明期の恒温室内に静置した。処理、放虫してから5日後に生死虫数を調査し、死虫率を算出した。なお、試験は2連制で行ない、チャノコカクモンハマキは感受性系統を供試した。結果を第8表に示した。

【0075】

第8表

供 試 化合物	死虫率 (%)	供 試 化合物	死虫率 (%)
1	100	8	100
3	100	12	100
7	100		

【0076】

【発明の効果】本発明は、以上実施例をあげて説明した

ように構成されているので、以下に記載されるような効果を奏する。本発明のヒドラジン誘導体は、公知の殺虫

剤たとえば有機リン剤、ピレスロイド剤等に対し抵抗性を示す害虫にもすぐれた殺虫効力を示し、水田、畑地、

果樹園、森林または環境衛生場面における有害生物防除場面で有効である。